

①9 BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Patentschrift
⑩ DE 195 00 791 C 1

⑤1 Int. Cl. 6:
C 07 D 251/50
D 06 L 3/12
C 07 D 251/48
// C 07 D 251/28

②1 Aktenzeichen: 195 00 791.3-44
②2 Anmeldetag: 13. 1. 95
④3 Offenlegungstag: —
④5 Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 1. 8. 96

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑦3 Patentinhaber:
Bayer AG, 51373 Leverkusen, DE

⑦2 Erfinder:
Feldhues, Ulrich, Dipl.-Chem. Dr., 51465 Bergisch
Gladbach, DE; Eckstein, Udo, Dipl.-Chem. Dr., 51061
Köln, DE; Vogt, Uwe, Dipl.-Chem. Dr., 40789
Monheim, DE; Brockmann, Rolf, Dipl.-Chem. Dr.,
51467 Bergisch Gladbach, DE

⑤6 Für die Beurteilung der Patentfähigkeit
in Betracht gezogene Druckschriften:
DE-AS 12 50 830

⑤4 Verfahren zur Herstellung von substituierten 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuresalzen

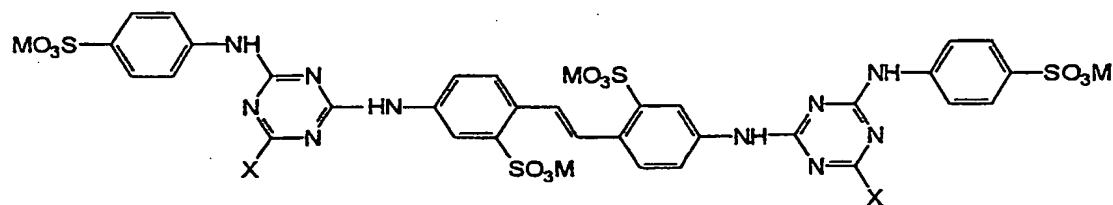
⑤7 Bei der Herstellung substituierter 4,4'-Diaminostilben-
2,2'-disulfonsäuresalze kann man dadurch eine deutliche
Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit erzielen, daß man
die Umsetzung des Tetrachlorderivats (III) mit dem Sulfon-
anilin (IV) in Gegenwart des Amins (VI) als Säurefänger
durchführt.

DE 195 00 791 C 1

DE 195 00 791 C 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel



(I)

worin

M für ein Alkalimetallion oder ein gegebenenfalls substituiertes Ammoniumion und X für N-Alkylamino oder N,N-Dialkylamino stehen, wobei im Fall von N,N-Dialkylamino die beiden gegebenenfalls durch ein Heteroatom aus der Reihe O, N, S unterbrochenen Alkylreste gemeinsam mit dem N-Atom, an das sie gebunden sind, einen gesättigten 5- oder 6gliedrigen Heterocyclus bilden können.

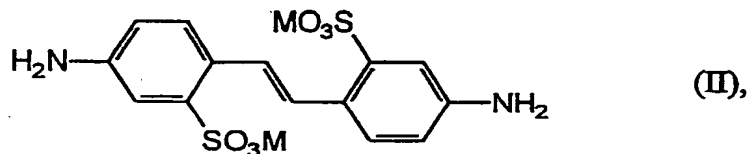
Die Verbindungen (I) sind wichtige optische Aufheller, u. a. für Polyamid, Cellulose und Papier.

Bevorzugte Alkalimetallionen sind Natrium- und Kaliumionen, bevorzugtes Ammoniumion ist das Triethanolammoniumion.

Unter Alkylresten in den zusammengesetzten Begriffen N-Alkylamino und N,N-Dialkylamino werden bevorzugt Alkylreste mit bis zu 4 C-Atomen verstanden, die durch ein O-Atom unterbrochen sein können und/oder einen in der Chemie der Weißtöner üblichen Substituenten wie Hydroxy, Cyano, Carbamoyl oder Sulfo tragen können.

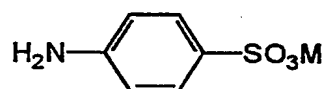
Beispiele für gesättigte 5- und 6gliedrige Heterocyclus, die aus den beiden Alkylresten der N,N-Dialkylamino-Gruppe und dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, gebildet werden können, sind beispielsweise Pyrrolidin, Piperidin, N-Methylpiperazin, N-2-Hydroxyethylpiperazin und insbesondere Morpholin.

Verfahren zur Herstellung von Verbindungen (I) aus Cyanurchlorid, einem 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuresalz der Formel



(II),

einem Sulfoanilin der Formel

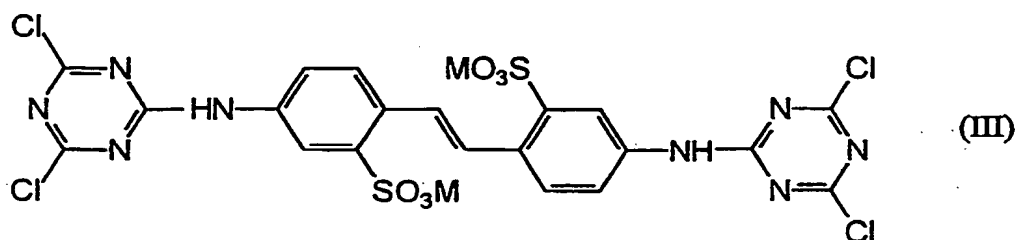


(IV)

und einem Amin XH (VI), wobei X jeweils die in (I) angegebene Bedeutung besitzt, sind beschrieben; DE-AS 12 50 830, GB-PS 1114 021 und 1174 631, US-PS 3 532 692, PL-PS 76 705, RO-PS 62 947, DD-PS 1 54 778 und 159 334, CS-PS 228 871, JP-PS 62/106 965.

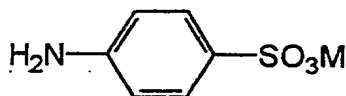
Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß sich unerwartete Vorteile einstellen, wenn man die Umsetzung des Reaktionsprodukts aus Cyanurchlorid und (II) mit (IV) in Gegenwart des Amins (VI) als Säurefänger durchführt.

Gegenstand der Erfindung ist also ein Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) durch Umsetzung von Cyanurchlorid mit einem 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuresalz der Formel (II) im Molverhältnis 2 : 1, anschließende Umsetzung der erhaltenen Verbindung der Formel



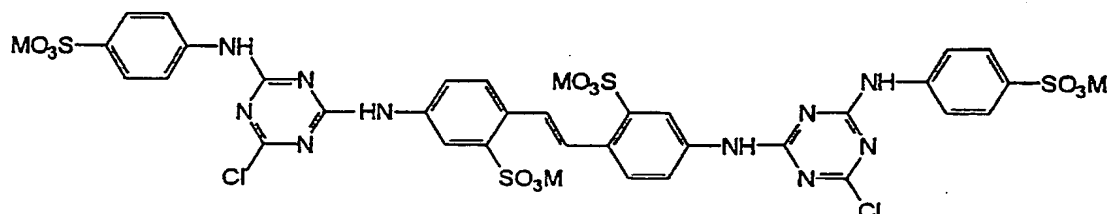
(III)

worin M die oben angegebene Bedeutung besitzt,
mit 2 Äquivalenten Sulfoanilin der Formel



(IV)

worin M die oben angegebene Bedeutung besitzt,
und anschließende Umsetzung der erhaltenen Verbindung der Formel



(V)

worin M die oben angegebene Bedeutung besitzt,
mit 2 Äquivalenten eines Amins der Formel XH (VI),
worin X die oben angegebene Bedeutung besitzt,
dadurch gekennzeichnet, daß man (III) mit (IV) in Gegenwart des Amins (VI) als Säurefänger umsetzt und zu
diesem Zweck Amin (VI) so zudosiert, daß der pH-Wert im Bereich von 3,0 bis 7,0, vorzugsweise im Bereich von
3,5 bis 6,0, insbesondere im Bereich von 4,0 bis 5,0 gehalten wird, und für die Umsetzung von (V) das Amin (VI)
aus seiner protonierten Form durch eine geeignete Base befreit.

Das erfindungsgemäße Verfahren führt zu einer deutlichen Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit, was zu
einer Umsetzung bei erheblich tieferen Temperaturen (d. h. unter milderer Bedingungen) als bisher ohne
Umsatzeinbußen ausgenutzt werden kann.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird im allgemeinen in der ersten Stufe ein
4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuredialkalisalz der Formel (II) in Form einer wäßrigen Lösung einer wäßrigen
Cyanurchlorid-Suspension im Temperaturbereich von 0 bis 25°C und im pH-Bereich von 3,5 bis 5,5 in Anwesen-
heit oder unter gleichzeitiger Zugabe eines wasserlöslichen, säurebindenden Mittels zur Neutralisation der
freigesetzten Salzsäure zugegeben. Zu diesem Zweck geeignete wasserlösliche säurebindende Mittel sind bei-
spielsweise Alkalihydroxide, Alkalicarbonate und Alkalihydrogencarbonate wie Natriumhydroxid, Kaliumhy-
droxid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Natriumhydrogencarbonat und Kaliumhydrogencarbonat oder Tri-
ethanolamin. Diese können in fester oder flüssiger Form, z. B. nach und nach über eine Förderschnecke, oder
vorteilhaft auch in Form ihrer wäßrigen Lösungen eingesetzt werden.

Die wäßrige Cyanurchlorid-Suspension enthält üblicherweise 0,05–2 Gew.-% (bezogen auf Cyanurchlorid)
benetzendes Tensid, vorzugsweise aus der Reihe alkoxylierter Fettalkohole, insbesondere mindestens einen mit
3 bis 10 Mol Ethylenoxid und 0 bis 25 Mol Propylenoxid alkoxylierten C₈–C₁₄-Fettalkohol, z. B. den Polyether
aus Laurylalkohol und 5 Mol Ethylenoxid und/oder den Polyether aus einem C₁₀-Alkohol und 6 Mol Ethylenoxid
und 8 Mol Propylenoxid.

Weiterhin kann die Cyanurchlorid-Suspension auch 0,05 bis 2,0 Gew.-% (bezogen auf Cyanurchlorid) Ent-
schäumer enthalten, der z. B. etwa zur Hälfte aus einer Mischung von C₁₅-Alkansulfamid und Ammoniumsalz der
C₁₅-Alkansulfonsäure und zur anderen Hälfte aus dem entsprechenden C₁₅-Alkan besteht.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, die Zugabe der Lösung
von (II), die zusätzlich eine zur Neutralisation der bei der Reaktion entstehenden Salzsäure gerade ausreichende
Menge eines wasserlöslichen säurebindenden Mittels enthält, zur wäßrigen Cyanurchlorid-Suspension pH-ge-
steuert bei einem pH-Sollwert aus dem Bereich 3,5–5,5, vorzugsweise 4,0–5,0, bei einer Temperatur von 5 bis
20°C durchzuführen, wobei die Abweichung des Sollwertes in der Regel nicht mehr als –0,5 oder +0,3 pH-Ein-
heiten beträgt. Praktisch ist der Endpunkt für die Zugabe der Lösung von (II) dann erreicht, wenn in 10 Minuten
weniger als 0,5% Lösung von (II) verbraucht werden.

Die zur Neutralisation der bei der Reaktion entstehenden Salzsäure gerade ausreichende Menge eines
wasserlöslichen säurebindenden Mittels beträgt theoretisch 2 Äquivalente.

Die Reaktion von (III) mit (IV) in Gegenwart des Amins (VI) kann in wäßriger Phase bei Temperaturen von
vorzugsweise 25 bis 75°C, insbesondere 40 bis 60°C durchgeführt werden. Nach einer besonderen Ausführungs-
form wird das Amin (VI), gegebenenfalls in Form einer Lösung, in die Reaktionsmischung, die (III) und (IV)
enthält, pH-gesteuert eintitriert. Bei einer solchen pH-gesteuerten Zugabe von (VI) dient ein aus dem pH-Ber-
eich zwischen 3 und 7 ausgewählter pH-Wert als Steuergröße. Wird dieser Sollwert unterschritten, fließt
solange (VI) in die gerührte Lösung oder Suspension von (III) ein, bis der ursprüngliche Wert wieder erreicht ist.
Das kann manuell oder vorzugsweise automatisch mit Hilfe eines Titrators erfolgen. Als Titrator eignet sich
beispielsweise ein DULCOMETER® vom Typ PR F2K2 der Firma Pro Minent.

Die Abweichung vom pH-Sollwert beträgt in der Regel nicht mehr als –0,5 oder +0,3 pH-Wert-Einheiten.

Wenn (III) verbraucht ist und somit unter diesen Bedingungen keine weitere Salzsäure mehr entsteht, stellt sich der als Sollwert gewählte pH wieder ein, ohne noch einmal wieder abzusinken, und der Zufluß stoppt.

Praktisch ist der Endpunkt für die Zugabe von (VI) bereits dann erreicht, wenn in 10 Minuten weniger als 0,5% von (VI) verbraucht werden.

Besonders bevorzugt ist die pH-gesteuerte Zugabe von (VI) bei einem pH-Sollwert aus dem Bereich von 4,0 bis 5,5, wobei auch hier die Abweichung von diesem Sollwert in der Regel nicht mehr als $-0,5$ oder $+0,3$ pH-Einheiten beträgt.

Die Angaben des Molverhältnisses von 2 : 1 bei der Umsetzung von (III) und (IV) und von 2 Äquivalenten (VI) bei der Umsetzung mit (V) sollen selbstverständlich nur die theoretische Stöchiometrie der Umsetzung kennzeichnen. Das schließt also nicht aus, daß z. B. (IV) im bis zu 10%igen Überschuß oder im bis zu 10%igen Unterschuß und z. B. (VI) zur Vervollständigung der Reaktion vorteilhaft auch im 5 bis 30%igen Überschuß eingesetzt wird.

Bevorzugt läßt man (IV) als wäßrige 40 bis 80°C heiße Lösung mit einer Konzentration über 1,5 mol/l zur Suspension von (III) zulaufen.

Bevorzugte Amine der Formel (VI) sind Morpholin, 2-Hydroxyethylamin, 2-Hydroxypropylamin, insbesondere Di-(2-hydroxyethyl)-amin und Di-(2-hydroxypropyl)-amin.

Das Amin (VI) wird durch den bei der Reaktion von (III) mit (IV) freigesetzten Chlorwasserstoff mit hoher Selektivität protoniert und wirkt in dieser Form nicht als Reaktionspartner für (III). Das Amin (IV) oder dessen wäßrige Lösung kann bereits die zur Neutralisation erforderliche Menge (VI) enthalten. In diesem Fall kann man die Titration beenden, wenn innerhalb von 10 Minuten weniger als 0,5% der theoretisch erforderlichen Gesamtmenge (VI) verbraucht werden.

Im Anschluß an die Reaktion zu (V) wird durch Zugabe von vorzugsweise je 2 Äquivalenten (pro Amin) eines Säurefängers das protonierte Amin zuerst zum Amin (VI) deprotoniert und die bei der Reaktion von (V) mit dem Amin (VI) entstehende Salzsäure abgefangen. Die Umsetzung von (V) und (VI) kann in bekannter Weise z. B. durch 2- bis 4-stündiges Erhitzen der Reaktionslösung auf Temperaturen von 90°C bis Siedetemperatur in Gegenwart eines Alkalihydroxids, eines substituierten Amins oder vorzugsweise eines Alkalicarbonats oder -hydrogencarbonats durchgeführt werden.

Die Aufarbeitung der nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Verbindungen (I) kann z. B. durch Aussalzen und Abfiltrieren erfolgen, oder man fällt (I) als in Wasser schwerlösliche freie Säure ($M = H$) aus der warmen Lösung aus und filtriert sie ab. Der feuchte Kristallkuchen kann dann in bekannter Weise zur Herstellung einer lagerstabilen flüssigen Zubereitung gegebenenfalls unter Zusatz eines oder mehrerer Formulierungsmittel, wie nichtionische oder anionische Tenside und/oder polare organische Lösungsvermittler wie Polyglykole oder Harnstoff, in Wasser gelöst werden, wobei man im Falle der freien Säure soviel Base zusetzt, daß diese wieder in ein gut wasserlösliches Salz zurückverwandelt wird. Eine sehr einfache, kostengünstige Aufarbeitung besteht darin, die Rohlösung von (I) durch Membrantrennverfahren unter Druck (Druckpermeation) weitgehend zu entsalzen, aufzukonzentrieren und direkt in die handelsübliche stabile flüssige Zubereitung zu überführen, z. B. nach DE-PS 32 34 784 oder DE-OS 22 04 725.

Diese rationelle Aufarbeitungsmethode läßt sich um so erfolgreicher anwenden, je reiner die Aufheller-Rohlösungen sind, die das Verfahren liefert, da die Nebenprodukte und Verunreinigungen bei der Druckpermeation mit Ausnahme der niedermolekularen Anteile nicht mit dem Permeat ausgeschleust werden, somit letztlich im Aufhellerpräparat verbleiben und dessen Effizienz beeinträchtigen können.

Die Prozentangaben der nachfolgenden Beispiele beziehen sich jeweils auf das Gewicht.

Beispiel 1

Im Reaktor werden 700 ml Wasser und 10 g Kochsalz eingetragen und 10 min verrührt. Anschließend setzt man unter Rühren 1,0 g eines Polyethers aus Isodecylalkohol, 6 mol Ethylenoxid und 8 mol Propylenoxid zu und kühlt den Ansatz auf ca. 10°C ab.

Man trägt unter Rühren 100 g Cyanurchlorid (0,542 mol) ein und spült mit 100 ml Wasser nach und verrührt die Suspension, bis der pH von selbst auf 4,5 gefallen ist.

Man verwendet einen automatischen Titrator, stellt diesen auf den oberen Grenzwert von pH 4,5 ein und titriert eine wäßrige auf 10°C gekühlte Lösung ein, die pro Liter 0,25 mol 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuredinatriumsalz und 0,25 mol Natriumcarbonat enthält, wobei man die Temperatur im Ansatz auf 18°C ansteigen läßt.

Theoretisch können 1084 ml Lösung verbraucht werden. Der Endpunkt der Reaktion ist erreicht, wenn innerhalb von 10 Minuten weniger als 5 ml verbraucht werden. Das ist nach 2 bis 2,5 Stunden bei einem Verbrauch von 99% der Theorie der Fall. Es entsteht eine gut rührbare hellgelbe Suspension.

Man wechselt die Titratorvorlage. Die Titratorvorlage enthält 87,2 g 80%ige wäßrige Diethanolaminlösung (0,664 mol). Man rührt 30 min bei pH 4,5 nach.

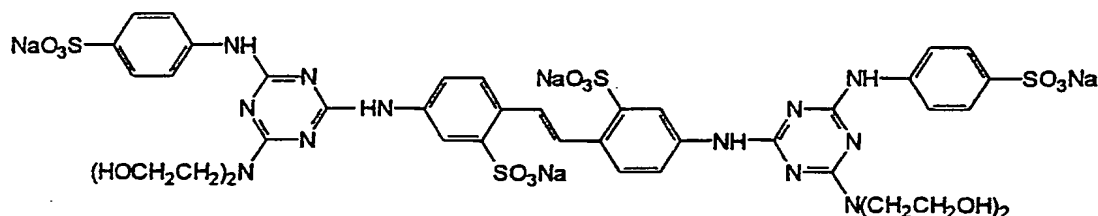
Anschließend läßt man 500 ml Natriumsulfanilatlösung, die in diesen 500 ml 0,528 mol Natriumsulfanilat enthält, innerhalb 30 Minuten einlaufen, wobei man die Temperatur im Reaktor auf 55°C erhöht. Man rührt 1 Stunde bei 55°C nach. Bis zu diesem Zeitpunkt werden über den Titrator ca. 74 g 80%ige wäßrige Diethanolaminlösung (0,56 mol) eindosiert. Die Aufnahme beträgt am Ende der Nachrührzeit weniger als 2 ml in 10 Minuten.

Man läßt den Rest der wäßrigen Diethanolaminlösung zulaufen und anschließend innerhalb 30 Minuten 402 g 15%ige wäßrige Sodalösung (0,569 mol).

Das Gemisch wird innerhalb einer Stunde auf 101°C erwärmt und 2 Stunden bei dieser Temperatur gehalten.

Man erhält 3,1 kg einer wäßrigen Rohlösung mit einer spezifischen Extinktion von 54 bei 350 nm. Die

Rohrlösung enthält 3,5% (0,11 kg) Kochsalz und 10% (0,31 kg) Aktivsubstanz, die im wesentlichen der Verbindung der Formel



entspricht.

Die Rohrlösung wird in der in DE-C 32 34 784, Beispiel 2 angegebenen Weise durch Druckpermeation bis auf einen Restgehalt von 0,5% Kochsalz entsalzt und dann auf ein Gewicht von 1,34 kg aufkonzentriert. Man erhält eine wäßrige Zubereitung mit einer spezifischen Extinktion von 125 bei 350 nm, 23% Aktivsubstanz und einem Elektrolytgehalt von <0,5%.

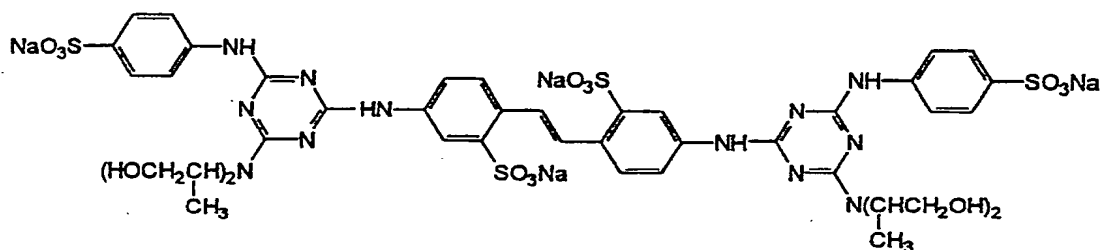
Beispiel 2

Man wiederholt Beispiel 1 mit dem Unterschied, daß man 300 ml NatriumsulfanilatLösung einer 60°C heißen Lösung einsetzt, die 0,528 mol Natriumsulfanilat enthält. Man erhält 2,9 kg einer wäßrigen Rohrlösung mit einer spezifischen Extinktion von 58 bei 350 nm. Die Aufarbeitung erfolgt analog Beispiel 1.

Beispiel 3

Man wiederholt Beispiel 1 mit dem Unterschied, daß man anstelle von Di-(2-hydroxyethyl)-amin eine äquivalente Menge (0,664 mol) Di-(2-hydroxypropyl)amin einsetzt. Die erhaltene wäßrige Rohrlösung (3,1 kg) wird durch Druckpermeation bis auf einen Restgehalt von 0,5% NaCl entsalzt und dann aufkonzentriert, bis die spezifische Extinktion 142 beträgt. Die erhaltenen 1,17 kg Konzentrat werden mit 130 g Octaethylenglykol-Homologengemisch (durchschnittliches Molekulargewicht 400) verrührt. Man erhält 1,3 kg einer stabilen wäßrigen Zubereitung mit einer spezifischen Extinktion von 128 und einem Elektrolytgehalt <0,5%.

Der Aufheller entspricht der Formel



Beispiel 4

In den Reaktor werden 500 ml Wasser und 10 g Kochsalz eingetragen und 10 min verrührt. Anschließend setzt man unter Rühren 1,0 g eines Polyethers aus Isodecylalkohol, 6 mol Ethylenoxyd und 8 mol Propylenoxyd zu und kühlt den Ansatz auf ca. 10°C ab.

Man trägt unter Rühren 100 g Cyanurchlorid (0,542 mol) ein und spült mit 100 ml Wasser nach und verrührt die Suspension, bis der pH von selbst auf 4,3 gefallen ist.

Man verwendet einen automatischen Titrator, stellt diesen auf den oberen Grenzwert von pH 4,3 ein und titriert eine wäßrige auf 10°C gekühlte Lösung ein, die pro Liter 0,25 mol 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuredinatriumsalz und 0,25 mol Natriumcarbonat enthält, wobei man die Temperatur der Reaktionsmischung auf 15°C ansteigen läßt.

Theoretisch können 1084 ml Lösung verbraucht werden. Der Endpunkt der Reaktion ist erreicht, wenn innerhalb von 10 Minuten weniger als 5 ml verbraucht werden. Das ist nach 2 bis 2,5 Stunden bei einem Verbrauch von 99% der Theorie der Fall. Es entsteht eine gut rührbare hellgelbe Suspension.

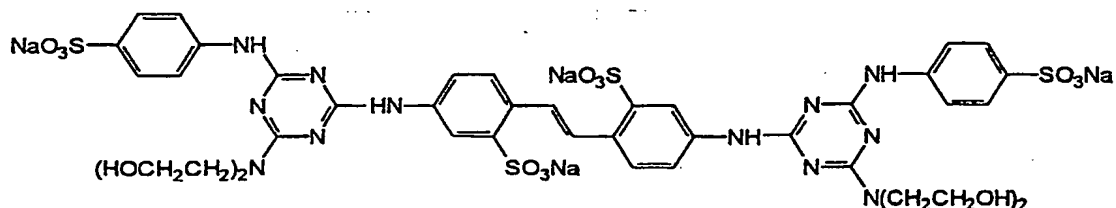
Man wechselt die Titratorvorlage. Die Titratorvorlage enthält in 700 ml wäßrige Lösung von 0,61 mol Natriumsulfanilat und 0,64 mol Diethanolamin. Man erhöht die Temperatur im Reaktor auf 55°C.

Theoretisch sollten 623 ml Lösung verbraucht werden. Der Endpunkt der Reaktion ist erreicht, wenn innerhalb von 10 Minuten weniger als 3 ml verbraucht werden. Das ist nach 1 Stunde bei einem Verbrauch von 101% der Theorie der Fall. Man läßt 17,2 g 50%ige wäßrige Diethanolaminlösung zulaufen und gibt anschließend innerhalb 30 Minuten 96 g Natriumhydrogencarbonat (1,14 mol) zu.

Das Gemisch wird innerhalb einer Stunde auf 101°C erwärmt und 3 Stunden bei dieser Temperatur gehalten.

Man erhält 2,7 kg einer wäßrigen Rohrlösung mit einer spezifischen Extinktion von 62 bei 350 nm. Die

Rohlösung enthält 4% (0,11 kg) Kochsalz und 11,5% (0,31 kg) Aktivsubstanz, die im wesentlichen der Verbindung der Formel

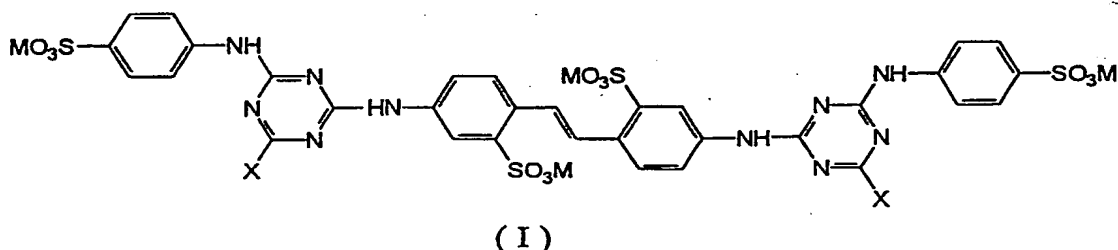


entspricht.

Die Rohlösung wird in der in DE-C 32 34 784, Beispiel 2 angegebenen Weise durch Druckpermeation bis auf einen Restgehalt von 0,5% Kochsalz entsalzt und dann auf ein Gewicht von 1,34 kg aufkonzentriert. Man erhält eine wäßrige Zubereitung mit einer spezifischen Extinktion von 125 bei 350 nm, 23% Aktivsubstanz und einem Elektrolytgehalt von < 0,5%.

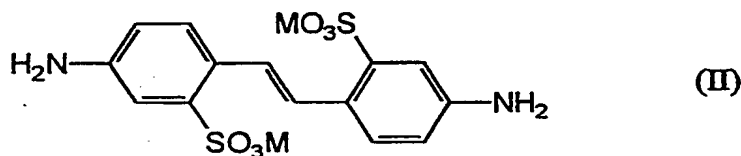
Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel

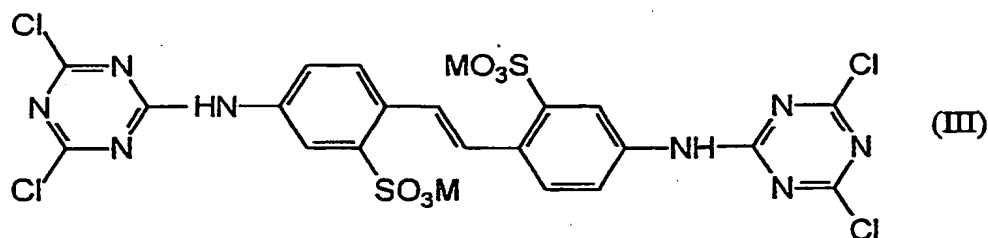


worin

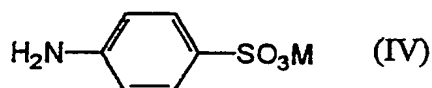
M für ein Alkalimetallion oder ein gegebenenfalls substituiertes Ammoniumion und X für N-Alkylamino oder N,N-Dialkylamino stehen, wobei im Fall von N,N-Dialkylamino die beiden gegebenenfalls durch ein Heteroatom aus der Reihe O, N, S, unterbrochenen Alkylreste gemeinsam mit dem N-Atom, an das sie gebunden sind, einen gesättigten 5- oder 6gliedrigen Heterocyclus bilden können, durch Umsetzung von Cyanurchlorid mit einem 4,4'-Diaminostilben-2,2'-disulfonsäuresalz der Formel



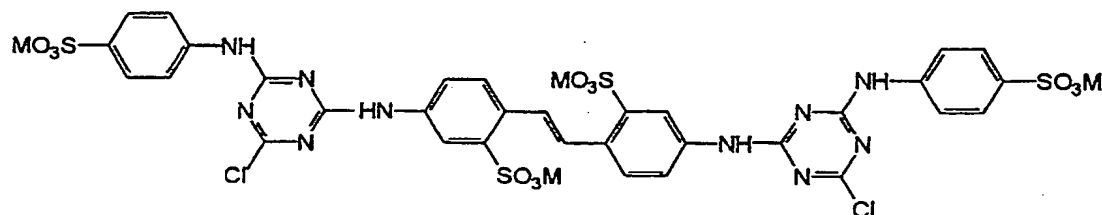
worin M die oben angegebene Bedeutung hat, im Molverhältnis 2 : 1, anschließende Umsetzung der erhaltenen Verbindung der Formel



worin M die oben angegebene Bedeutung besitzt, mit 2 Äquivalenten Sulfoanilin der Formel



worin M die oben angegebene Bedeutung hat,
und anschließende Umsetzung der erhaltenen Verbindung der Formel



(V)

- worin M die oben angegebene Bedeutung besitzt,
mit 2 Äquivalenten eines Amins der allgemeinen Formel XH (VI),
worin X die oben angegebene Bedeutung besitzt,
dadurch gekennzeichnet, daß man (III) mit (IV) in Gegenwart des Amins (VI) als Säurefänger umsetzt und
zu diesem Zweck Amin (VI) so zudosiert, daß der pH-Wert im Bereich von 3,0 bis 7,0 gehalten wird, und für
die Umsetzung von (V) das Amin (VI) aus seiner protonierten Form durch eine geeignete Base befreit.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Zugabe von (VI) im Temperaturbereich von
25 bis 75°C bei einem pH-Sollwert von 3,5 bis 6,0 erfolgt und die Abweichung von diesem Sollwert nicht
mehr als -0,5 bis +0,3 pH-Einheiten beträgt.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Zugabe von (VI) im Temperaturbereich von
40 bis 60°C bei einem pH-Sollwert von 4,0 bis 5,0 erfolgt und die Abweichung von diesem Sollwert nicht
mehr als -0,5 bis +0,3 pH-Einheiten beträgt.
4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung von Cyanurchlorid mit der
Verbindung (II) in der Weise durchgeführt wird, daß eine wäßrige Lösung von (II), die zusätzlich eine zur
Neutralisation der bei der Reaktion entstehenden Salzsäure gerade ausreichende Menge eines wasserlöslichen
säurebindenden Mittels enthält, pH-gesteuert bei einem pH-Sollwert aus dem Bereich 3,5 bis 5,5 und
einer Temperatur von 5 bis 20°C der wäßrigen Cyanurchlorid-Suspension zugegeben wird.
5. Verfahren nach Anspruch 1 und 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung von Cyanurchlorid mit
der Verbindung der Formel (II) in der Weise durchgeführt wird, daß die wäßrige Lösung von (II) auf 5 bis
15°C gekühlt eingesetzt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 1 und 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbindung (IV) als wäßrige 40 bis
80°C heiße Lösung mit einer Konzentration größer 1,5 mol/Liter eingesetzt wird.
7. Verfahren zur Herstellung einer konzentrierten flüssigen Zubereitung der nach Anspruch 1 erhaltenen
Produkte, dadurch gekennzeichnet, daß man die Rohlösung der Verbindung (I) mit Hilfe eines Membran-
verfahrens unter Druck entsalzt und aufkonzentriert.
8. Verfahren nach Anspruch 1 und 4, dadurch gekennzeichnet, daß in der Verbindung (I) X für Di-(2-hy-
droxyethyl)-amino steht.
9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß (IV) im bis zu 10%igen Überschuß oder im bis
zu 10%igen Unterschuß und (VI) im 5 bis 30%igen Überschuß eingesetzt wird.
10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die wäßrige Lösung von (IV) die zur Neutrali-
sation des bei der Reaktion entstehenden Chlorwasserstoffs erforderliche Menge (VI) enthält und man mit
dieser Kombination titriert, bis in 10 Minuten weniger als 0,5% der theoretisch erforderlichen Gesamtmen-
ge verbraucht werden.

- Leerseite -